## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

08-253559

(43) Date of publication of application: 01.10.1996

(51)Int.CI.

CO8G 59/62 CO8G 59/46 // CO8G 14/09

(21)Application number: 07-058832

(71)Applicant: DAINIPPON INK & CHEM INC

(22)Date of filing:

17.03.1995

(72)Inventor: IKEDA HISASHI

**KUNITOMO HIDEO** 

### (54) EPOXY RESIN COMPOSITION

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain an epoxy resin composition which can give a cured product excellent in heat resistance, humidity resistance, soldering resistance and adhesion to a metal.

CONSTITUTION: An epoxy resin composition comprising an epoxy resin and a curing agent, wherein the curing agent used comprises a phenol resin composition comprising a mixture or condensate of a phenol with a triazine-ring- containing composed and an aldehyde, being free from an unreacted aldehyde and being substantially free from methylol groups and dicyadiamide.

### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

10.08.1999

[Date of sending the examiner's decision of

rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

3327039

[Date of registration]

12.07.2002

[Number of appeal against examiner's decision of

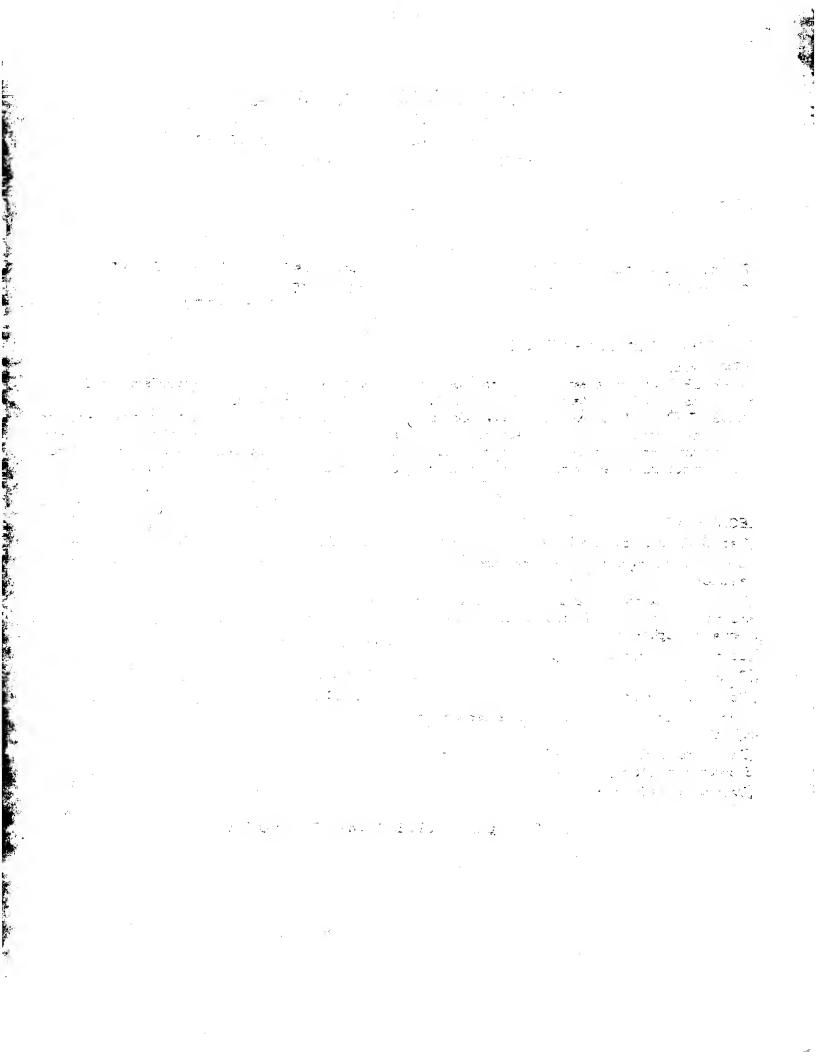
rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's

decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office



(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

# 特開平8-253559

(43)公開日 平成8年(1996)10月1日

(51) Int.Cl.6	識別記号	庁内整理番号	FI 🚵 .		技術表示箇所
C 0 8 G 59/62	NJU		C 0 8 G 59/62	NJU	*
59/46	NÍD		59/46	NJD	
// C08G 14/09	NDE		14/09	NDE	

審査請求 未請求 請求項の数7 OL (全 7 頁)

(21)出願番号

特願平7-58832

(22)出願日

平成7年(1995)3月17日

(71)出願人 000002886

大日本インキ化学工業株式会社

東京都板橋区坂下3丁目35番58号

(72)発明者 池田 尚志

千葉県市原市辰巳台東4ー4

(72)発明者 国友 秀夫

千葉県千葉市美浜区稲毛海岸3-3-6-

302

(74)代理人 弁理士 高橋 勝利

(54) 【発明の名称】 エポキシ樹脂組成物

### (57)【要約】

【構成】エポキシ樹脂と硬化剤とからなるエポキシ樹脂 組成物において、硬化剤として、フェノール類とトリア ジン環を有する化合物とアルデヒド類との混合物又は縮 合物からなり、該混合物又は縮合物中に未反応アルデヒ ド類を含まず、かつメチロール基を実質的に含まないフェノール樹脂組成物(A)とジシアンジアミド(B)と を使用することを特徴とするエポキシ樹脂組成物を提供 する。

【効果】本発明のエポキシ樹脂組成物は、耐熱性、耐湿性、耐半田性及び金属密着性に優れる硬化物を得ることができる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】エポキシ樹脂と硬化剤とからなるエポキシ樹脂組成物において、硬化剤として、フェノール類とトリアジン環を有する化合物とアルデヒド類との混合物又は縮合物からなり、該混合物又は縮合物中に未反応アルデヒド類を含まず、かつメチロール基を実質的に含まないフェノール樹脂組成物(A)とジシアンジアミド(B)とを使用することを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

【請求項2】トリアジン環を有する化合物が、一般式 (I) で示される化合物及び/又は一般式(II) で示される化合物であることを特徴とする請求項1記載のエポキシ樹脂組成物。

【化1】

$$\begin{array}{c} R_1 \\ R_2 - R_3 \end{array} \tag{1}$$

(式中、R1、R2、R8は、アミノ基、アルキル基、フェニル基、ヒドロキシル基、ヒドロキシル基、ヒドロキシルアルキル基、エーテル基、エステル基、酸基、不飽和基、シアノ基、ハロゲン原子のいずれかを表す)

[化2]

(式中、R1、R5、R6は、水素原子、アルキル基、フェニル基、ヒドロキシル基、ヒドロキシル基、ヒドロキシルアルキル基、エステル基、酸基、不飽和基、シアノ基、ハロゲン原子のいずれかを表す)

【請求項3】一般式(I)中、R1、R2、R3のうちの少なくとも1つがアミノ基であることを特徴とする請求項1又は2記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項4】一般式(I)中、R1、R2、R3のうちのいずれか2つがアミノ基であることを特徴とする請求項3 記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項5】 ─般式(I) 中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub> 及びR<sub>3</sub>がアミノ 基であることを特徴とする請求項3記載のエポキシ樹脂 40 組成物。

【請求項6】一般式 (II) 中、 $R_4$ 、 $R_5$ 及び $R_6$ が水素であることを特徴とする請求項 $1\sim5$ のいずれか1項記載のエポキシ樹脂組成物。

【 請求項7】混合物又は縮合物中に含まれる未反応の一 官能性フェノール単量体類が3重量%以下である請求項 1 記載のエポキシ樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【産業上の利用分野】本発明は、積層用、成型用、接着 50 のではなく、たとえばフェノール、あるいはクレゾー

用、**塗料用、特にガラスエポキシ樹脂積層板用に適する** エポキシ樹脂組成物に関するものである。

[0002]

(2)

10

【従来の技術】近年、電子機器の小型化に伴ってプリント配線板は高密度化、高信頼化が求められている。

【0003】プリント配線板は、特に吸湿時の賭特性が 従来よりも大きく品質に影響する傾向にあり、より高い レベルの耐マイグレーション性、耐半田性、あるいは金 属との密着性などが求められている。

【0004】一方、積層板の賭物性を向上させる処方としてノボラック樹脂とジシアンジアミドを併用する方法が数多く考案されている。例えば特開昭64-1755号公報には、フェノールノボラック樹脂あるいはクレゾールノボラック樹脂とジシアンジアミドを用いる方法、特開昭63-215734号公報にはアルキルフェノールノボラック樹脂とジシアミンジアミドを用いる方法などである。

[0005]

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、上記したフェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂をジシア脂あるいはアルキルフェノールノボラック樹脂とジシアンジアミドとを併用するとノボラック樹脂を単独で使用した場合と比較して耐熱性、耐湿性などが低下するという欠点があった。

[0006] 本発明は、耐熱性、耐湿性などが保持され、耐マイグレーション性、耐半田性、金属との密着性等が改善されたエポキシ樹脂組成物を提供することを目的とする。

[0007]

【問題点を解決するための手段】本発明者らは、上記実情に鑑みて鋭意検討した結果、特定組成を有するフェノール樹脂組成物を、ジシアンジアミドとともに硬化剤として用いた場合には、上記課題が解決されることを見い出し、本発明を完成するに至った。

【0008】すなわち本発明は、エポキシ樹脂と硬化剤とからなるエポキシ樹脂組成物において、硬化剤として、フェノール類とトリアジン環を有する化合物とアルデヒド類との混合物又は縮合物からなり、該混合物又は縮合物中に未反応アルデヒド類を含まず、かつメチロール基を実質的に含まないフェノール樹脂組成物(A)とジシアンジアミド(B)とを使用することを特徴とするエポキシ樹脂組成物に関する。

【0009】本発明は、耐熱性、耐湿性、耐半田性、および金属密着性に優れる硬化物を与えることができ、積層用、成型用、接着用、塗料用、特にガラス等の基材からなるエポキシ樹脂積層板用に適するエポキシ樹脂組成物を提供するものである。

【0010】本発明におけるフェノール樹脂組成物を得るための前記フェノール類としては、特に限定されるものではなく、たとえばフェノール、あるいはクレゾー

3

ル、キシレノール、エチルフェノール、プチルフェノール、ノニルフェノール、オクチルフェノールなどのアルキルフェノール類、ピスフェノールA、ピスフェノールF、ピスフェノールS、レゾルシン、カテコールなどの多価フェノール類、ハロゲン化フェノール、フェニルフェノール、アミノフェノールなどが挙げられる。またこれらのフェノール類は、その使用にあたって1種類のみに限定されるものではなく、2種以上の併用も可能である。

【0011】さらに本発明のフェノール樹脂組成物を得るためのトリアシン環を含む化合物としては、特に限定されるものではないが、次の一般式(I)及び/又は一般式(II)で表わされる化合物であることが好ましい。

[0012]

[化3]

$$\begin{array}{c|c}
R_1 \\
R_2 & R_3
\end{array}$$

【0013】(式中、R1、R2、R3は、アミノ基、アルキル基、フェニル基、ヒドロキシル基、ヒドロキシル アルキル基、エーテル基、エステル基、酸基、不飽和 基、シアノ基、ハロゲン原子のいずれかを表す)

[0014]

【化4】

【0015】(式中、R4、R5、R6は、水素原子、アルキル基、フェニル基、ヒドロキシル基、ヒドロキシル アルキル基、エステル基、酸基、不飽和基、シアノ基、ハロゲン原子のいずれかを表す)

一般式 (I) 中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ のうち少なくとも1つが アミノ基であることが好ましい。

【0016】一般式(I)で示される化合物としては、 具体的には、たとえばメラミン、あるいはアセトグアナ ミン、ベンゾグアナミンなどのグアナミン誘導体、シア ヌル酸、あるいはメチルシアヌレート、エチルシアヌレ ート、アセチルシアヌレート、塩化シアヌルなどのシア ヌル酸誘導体等が挙げられる。これらの中でもR1、 R2、R3のうちのいずれか2つ又は3つがアミノ基であるメラミン、アセトグアナミン、ベンゾグアナミンなど のグアナミン誘導体がより好ましい。

【0017】一般式(II)で示される化合物としては、 具体的にはイソシアヌル酸、あるいはメチルイソシアヌ レート、エチルイソシアヌレート、アリルイソシアヌレ ート、2-ヒドロキシエチルイソシアヌレート、2-カ ルボキシルエチルイソシヌレート、塩素化イソシアヌル 50

酸などのイソシアヌル酸誘導体などが挙げられる。これらの中でも $R_4$ 、 $R_5$ 、 $R_6$ のすべてが水素原子であるイソシアヌル酸が最も好ましい。またこの互変異性体である一般式(I)で表わされる化合物に当たるシアヌル酸も同様に好ましい化合物である。

【0018】これらの化合物も使用にあたって1種類のみに限定されるものではなく2種以上の併用が可能である。本発明のフェノール性硬化剤を得るためのアルデヒド類は特に限定されるものではないが、取扱いの容易さからホルムアルデヒドが好ましい。ホルムアルデヒドとしては、限定するものではないが、代表的な供給源としてホルマリン、パラホルムアルデヒド等が挙げられる。

【0019】本発明のフェノール性硬化剤は未反応アルデヒド類を含まず、かつメチロール基を実質的に含まないことを特徴とするものである。未反応アルデヒド類あるいはメチロール基を含むとエポキシ樹脂との配合安定性が悪くなる。また本発明のフェノール性硬化剤に含まれる未反応一官能性フェノール単量体は2重量%以下であることが好ましい。未反応一官能性フェノール単量体を2%以上含有するとエポキシ樹脂との配合安定性が悪くなるばかりでなく、得られる硬化物の耐熱性、耐湿性が劣ることになる。なお、ここでいうところの未反応一官能性フェノール単量体とは1分子中にエポキシ基と反応し得るフェノール性の水酸基を1つだけ含むフェノール単量体を意味する。

【0020】以下に本発明のフェノール性硬化剤を得る ための代表的な方法について説明する。まず、前記した フェノール類とアルデヒド類とトリアジン環を有する化。 合物とを塩基性あるいは酸性触媒下で反応させる。この 時、系のpHは特に限定されるものではないがトリアジ ン環を含む化合物の多くが塩基性溶液に容易に溶解する ことから、塩基性触媒下で反応させるのが好ましく、さ らにはアミン類の使用が好ましい。また、各原料の反応 順序も特に制限はなく、フェノール類、アルデヒド類を まず反応させてからトリアジン環を有する化合物を加え ても、逆にトリアジン環を有する化合物とアルデヒド類 を反応させてからフェノール類を加えても、同時に全て の原料を加えて反応させても良い。この時、フェノール 類に対するアルデヒド類のモル比は特に限定されるもの ではないが $0.2 \sim 1.5$ で、好ましくは $0.4 \sim 0.7$ 8 である。またフェノール類に対するトリアジン環を有 する化合物との重量比は10~98:90~2で好まし くは50~95:50~5である。フェノール類の重量 比が10%以下では樹脂化することが困難となり、98 %以上では充分な難燃効果を得ることができなくなる。 また触媒として特に限定されるものではないが、代表的 なものとして水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸 化バリウム等のアルカリ金属およびアルカリ土類金属の 水酸化物、およびこれらの酸化物、アンモニア、1~3 級アミン類、ヘキサメチレンテトラミン、炭酸ナトリウ

5

ム等、そして塩酸、硫酸、スルホン酸等の無機酸、シュ ウ酸、酢酸等の有機酸、ルイス酸、あるいは酢酸亜鉛な どの2価金属塩等がある。ここで電気電子材料用のエポ キシ硬化剤として使用される場合には、金属などの無機 物が触媒残として残ることは好ましくないことから、塩 基性の触媒としてはアミン類、酸性の触媒としては有機 酸を使用するのが好ましい。また反応制御の面から反応 を各種溶媒の存在下で行ってもよい。次に必要に応じて 中和、水洗して塩類などの不純物を除去する。ただし触 媒にアミン類を使用した場合には行わないことが望まし い。反応終了後、未反応のアルデヒド類、フェノール 類、溶媒等を常圧蒸留、真空蒸留等の常法にしたがって 除去する。この時、本発明の硬化剤樹脂組成物の特徴で ある未反応のアルデヒド類とメチロール基を実質的に含 まない樹脂組成物を得るためには120℃以上の加熱処 理を必要とする。この時ノボラック樹脂を得るときの常 法にしたがい充分に加熱、蒸留することが好ましい。ま たこの時前記したように未反応一官能性のフェノール単 量体類を2%以下にすることが好ましい。:

【0021】このようにして得られたものは、フェノール類とトリアジン環を有する化合物とアルデヒド類との混合物又は縮合物からなり、該混合物又は縮合物中に未反応アルデヒド類を含まず、かつメチロール基を実質的に含まないことを特徴とするフェノール樹脂組成物である。

【0022】本発明のエポキシ樹脂組成物を得るための前記エポキシ樹脂は、特に限定されるものではなく、また数種類のエポキシ樹脂を使用しても何等差し支えない。ここで言うエポキシ樹脂とは1分子中に1個以上のオキシラン環を有する化合物であり、代表的なものには、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ポリフェノール型エポキシ樹脂、脂肪族エポキシ樹脂、芳香族エステル型エポキシ樹脂、環状脂肪族エステル型エポキシ樹脂、およびエポキシ樹脂、エーテルエステル型エポキシ樹脂、およびエポキシ化大豆油の如き非グリシジル系エポキシ樹脂およびこれらの臭素あるいは塩素等のハロゲン置換体等がある。

 $[0\ 0\ 2\ 3]$  エポキシ樹脂と本発明のフェノール性硬化剤とジシアンジアミドとの混合割合は、特に限定されるものではないが、エポキシ樹脂  $1\ 0\ 0$  重量部に対してフェノール性硬化剤を $1\sim 3\ 0$  重量部、ジシアンジアミドを $0.\ 1\sim 5$  重量部とするのが良い。

【0024】また、本発明のエポキシ樹脂組成物を硬化させるに際して、必要に応じて促進剤として、一般にエポキシ化合物の硬化に用いられている種々のものの使用が可能である。これにはイミダゾールおよびその誘導体、ホスフィン化合物、アミン類、BF®アミン化合物などが例示される。

【0025】さらに本発明のエポキシ樹脂組成物において使用される溶剤としては、特に限定されず、必要に応 50

じて種々のものが使用出来る。例えば、アセトン、メチルエチルケトン、トルエン、キシレン、メチルイソプチルケトン、酢酸エチル、エチレングリコールモノメチルエーテル、N, N-ジメチルホルムアミド、メタノール、エタノールなどが挙げられ、これらの溶剤は、適宜に2種または、それ以上の混合溶剤として使用することも可能である。

【0026】本発明のエボキシ樹脂組成物には、さらに 必要に応じて種々の添加剤、難燃剤、充填剤等を適宜配 合することが出来る。本発明のエボキシ樹脂組成物は、 積層板用のみならず、半導体封止材、注型材料、筐体、 床材、接着剤、電絶塗料等に使用することができる。

【実施例】次に本発明を実施例により詳しく説明するが、本発明はこの実施例のみに限定されるものではない。以下、%は「重量%」を、部は「重量部」を表わすものとする。

[0028]

[0027]

[合成例1] (フェノール樹脂組成物の合成例)

フェノール94部、ベンゾグアナミン9.4部に41.5%ホルマリン51部、およびシュウ酸0.47部を加え、発熱に注意しながら徐々に100℃まで昇温した。100℃にて5時間反応させた後、常圧下にて水を除去しながら180℃まで昇温し、減圧下にて未反応のフェノールを除去し、軟化点103℃のフェノール樹脂組成物を得た。

【0029】以下この組成物を「N1」と略記する。得られた組成物中のフェノール類とトリアジン環を有する化合物の重量比率、未反応ホルムアルデヒド量、メチロール基の存在の有無、および未反応フェノールモノマー量は次のように求めた。

⟨フェノールとトリアジン環を有する化合物(ベンゾグアナミン)の重量比率⟩180℃、減圧下にて反応系外に除去した流出物中のフェノール含量をガスクロマトグラフィから算出し、仕込みのフェノール部数から引いて組成物中のフェノール存在量とした。ベンゾグアナミンは仕込み量がそのまま組成物中に含まれることとした。両者の比率を存在比とした。

カラム: 30%セライト545カルナパワックス2m× 3mmΦ

カラム温度:170℃ 注入口温度:230℃

検出器:FID

キャリアガス: N2ガス 1.0 kg/cm2

測定法: 内部標準法

<未反応ホルムアルデヒド量>蒸留水50gに細かく粉砕した組成物約5gを加え、室温で24時間保持した。 pH計にセットレ、N/10塩酸水溶液を加えてpH=4.0に調整した。これにpH=4.0に調整した7% ヒドロキシルアミン水溶液50mlを加え、アルミ箔等

で密封して30分放置した。その後pH計にセットし、 1Nの水酸化ナトリウム溶液でpH=4.0に中和する まで適定する。次式により遊離ホルムアルデヒド量を決\* [0030]

未反応(遊離)ホルムアルデヒド(%) =-----×100

<メチロール基の存在の有無>C13-NMRを用いて樹

装置:日本電子(株)製 GSX270

プロトン:270MHz

測定溶媒: 重メタノールあるいは重アセトン

脂組成物中に存在するメチロール基を測定した。

基準物質:テトラメチルシラン

測定条件

パルス条件: 45°×4000times

パルス間隔:2秒

得られたチャートの60~70ppmに現れ、ノイズと 明確に区別され得るピークを用いて判定した。ピークが 認められた場合を「有」、認められない場合を「無」と した。

<未反応フェノールモノマー量>先に示したガスクロマ 20 トグラフィと同様の測定条件において組成物中のフェノ ールモノマー含量を測定した。このようにして求められ た各成分量は表1にまとめて記した。

[0031]

[合成例2] (フェノール樹脂組成物の合成例)

フェノール94部に41.5%ホルマリン29部、およ びトリエチルアミン0. 47部を加え、80℃にて3時 間反応させた。メラミン19部を加えさらに1時間反応 させた後、常圧下にて水を除去しながら120℃まで昇 温し、温度を保持したまま2時間反応させた。次に常圧 30 下にて水を除去しながら180℃まで昇温し、減圧下に て未反応のフェノールを除去し、軟化点136℃のフェ ノール樹脂組成物を得た。フェノールとメラミンの重量 比率、未反応ホルムアルデヒド量、メチロール基の存在 の有無、および未反応フェノールモノマー量を求め、結 果を表1にまとめて示した。

【0032】以下この組成物を「N2」と略記する。

[合成例3] (フェノール樹脂組成物の合成例)

フェノール94部に41.5%ホルマリン36部、およ びトリエチルアミン0.47部を加え、80℃にて3時 40 間反応させた。次にメラミン14部とベンゾグアナミン 14部を加えてさらに2時間反応させた。以下合成例2 と同様の方法で反応させて軟化点130℃のフェノール 樹脂組成物を得た。合成例1と同様にしてフェノールと メラミン、ベンゾグアナミンの重量比率、未反応ホルム アルデヒド量、メチロール基の存在の有無、および未反 応フェノールモノマー量を求め、結果を表1にまとめて 示した。

【0033】以下この組成物を「N3」と略記する。

AXFX30

S×1000

[合成例4] (フェノール樹脂組成物の合成例)

フェノール94部、シアヌル酸9.4部、41.5%ホ ルマリン43部を加え80℃にて4時間反応させた。次 10 に常圧下にて水を除去しながら120℃まで昇温し、温 度を保持したまま2時間反応させた。次に常圧下にて水 を除去しながら180℃まで昇温し、減圧下にて未反応 のフェノールを除去し、軟化点110℃のフェノール樹 脂組成物を得た。フェノールとシアヌル酸の重量比率、 未反応ホルムアルデヒド量、メチロール基の存在の有 無、および未反応フェノールモノマー量を求め、結果を 表1にまとめて示した。

【0034】以下この組成物を「N4」と略記する。 [合成例5] (フェノール樹脂組成物の合成例)

ビスフェノールA228部、トリアリルイソシアヌレー ト11部、41.5%ホルマリン36部、メタノール2 0部及びシュウ酸1.1部を加え、以下合成例1と同様 の方法で反応させて軟化点98℃のピスフェノール樹脂 組成物を得た。ビスフェノールとトリアリルイソシヌレ ートの重量比率は仕込み値の比率を用い、未反応ホルム アルデヒド量、メチロール基の存在の有無、および未反 応フェノールモノマー量は前述した方法にしたがって求 め、結果を表1にまとめて示した。

【0035】以下この組成物を「N5」と略記する。 [合成例6] (フェノール樹脂組成物の合成例)

滅圧下で未反応フェノールを除去する際、除去が完了す る前に常圧に戻して、未反応フェノールが残存するよう にした以外は、合成例2と同様の方法にて軟化点130 ℃のフェノール樹脂組成物を得た。フェノールとメラミ ンの重量比率、未反応ホルムアルデヒド量、メチロール 基の存在の有無、および未反応フェノールモノマー量を 求め、結果を表1にまとめて示した。

【0036】以下この組成物を「N6」と略記する。フ ェノールノボラック樹脂〔大日本インキ化学工業株式会 社製:TD-2131]を「PN」と略記する。

【0037】アルキルフェノールノボラック樹脂〔大日 本インキ化学工業株式会社製:VH-4170]を「A N」と略記する。未反応ホルムアルデヒド量、メチロー ル基の存在の有無、および未反応フェノールモノマー量 は前述した方法にしたがって求め、結果を表1にまとめ て示した。

[0038]

【表1】

組成物	フェノール類/トリアジン環類	未反応机切析*ヒト* (%)	好小 基	未反応フェ/-ル (%)
N 1	89/11	0	無	0.5
N 2	76/24	0	無	0. 3
N 3	65/35	- 0	無	1. 2
N 4	88/12 -	0	無	0. 3
N 5	95/5	0	無	0. 0
N 6	77/23	0	無	3. 6
PN	<del>-</del> .	0	無、	0. 1
AŊ		0	無	0. 0

#### 実施例1~6および比較例1~3・

エピクロン1121 [大日本インキ化学工業株式会社製臭素化工ポキシ樹脂:エポキシ当量490]100部に対して、硬化剤としてN1~N6、PN、ANの組成物と、DICYを各々表2に示した割合にて配合した。この時、エピクロン1121及び各硬化剤は予めそれぞれメチルエチルケトン/ジメチルホルアミド=50/50重量部の混合溶剤に溶解させてから使用した。次いで各々に促進剤として2-エチル4-メチルイミダゾール(以下、2E4M2と略記する。)0.2部を加えて、さらに溶液の不揮発分をメチルエチルケトンにて55%に調整し、実施例1~5および比較例1~3の混合溶液を調整した。

【0039】しかるのち、各々の混合溶液をガラスクロスに含浸させ、160℃で3分間乾燥してプリプレグを得た。このプリプレグを8枚重ね、その両面に $35\mu$ の

銅箔を重ね、170℃、圧40kgf/cm<sup>2</sup>にて1時間加熱加圧成型して厚さ1.5mmの両面銅張積層板を作製した。

【0040】次いで、積層板は、エッチング処理を施し、銅箔除去した後、各物性試験を行った処、表2に示されるような結果が得られた。

- \*1:昇温スピード 3℃/min
- \*2:プレシャークッカーテスト (PCT) は、120 ℃水蒸気下中で、所定時間試験片を処理した。
- 耐半田性試験は、PCT処理後260℃の半田浴に20 sec浸漬して評価を行った。評価は、その試験片の外観、特にミーズリングの有無を目視判定により行った。
   【0041】〇:全く異常なしΔ:わずかにミーズリング発生×:ミーズリング有り

【表2】

[0042]

				実 施 例					比較例	
		1.	2	3	4	5	6 !	1	2	3
エピ	クロン1121(部);	100	100	100	300	100	100 .	100	100	100
	N 1	20	!							
<u> </u>	N 2		20 j			i				
硬一	N 3	ı		20						
化片	N4		•		2 0		1	i		
Ī	N5 .	!	]	·!	1	10				
和一	N 6				ļ		20			
部	PN		i	i		i		20		10
-	AN								20	
<u>'</u>	ジシアンジアミド	1.0	1.0	1.0	0. ā	2.0	1.0	1.0	1.0	2. 0
<u> </u>	2E4MZ (部)	C. 2	0.2	0.2	0.2	0.2.	0.2	0. 2	0.2	0. 2
ガ Tg	ラス転移温度 [DNA法]で *1	153	153	154	155	157	152	152	142	145
	ピール強度 常温](kg/cm)	2.3	2.1	2.3	2. 1	2.4	2. 2	1. 9	1.8	2. 0
	育問剥離強度 常温](kg/cm)	2, 2	2.2	2.2	2. 1	2.4	2.1	2. 0	1.9	2. 1
ブ レッ	シャークラカーテスト =2 水率 2hrs(%) 4hrs(%)	0.35	0.36	0.35	0.31	0.38	0.37 0.52	0.38 0.51	0.43 0.60	0.4
	湿・耐半田性	0	. 0	0	0	0	0	0	Δ	Δ

[0043] 【発明の効果】本発明のエポキシ樹脂組成物は、耐熱 性、耐湿性、耐半田性及び金属密着性に優れる硬化物を 得ることができる。

	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
	•
**	
Y .	
* * * * * * * * * * * * * * * * * * *	
2	
·-	
والمراجعة المواجعة ا	
مراد	$\frac{1}{y}$
*	
- 1	
* * * * * * * * * * * * * * * * * * * *	
· · ·	
	y σ γ γ γ γ γ γ γ γ γ γ γ γ γ γ γ γ γ γ
	*
	$\mathcal{F}_{\mathbf{q}}$
The state of the s	
	*
	T.
•	
· ·	
	*
•	
•	